

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : **63-046281**

(43)Date of publication of application : **27.02.1988**

---

(51)Int.Cl.

C09J 3/14

C09J 3/14

C09J 3/16

---

(21)Application number : **62-086359**

(71)Applicant : **TAKEDA CHEM IND LTD**

(22)Date of filing : **08.04.1987**

(72)Inventor : **GOTOU SENGO  
KUBOTA TSUTOMU  
MIYAJI MASUO  
KOTANI REIICHI**

---

(30)Priority

Priority number : **61 84547** Priority date : **11.04.1986** Priority country : **JP**

---

### (54) ADHESIVE COMPOSITION

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the titled composition, containing a compound having a high molecular weight and photopolymerizable double bonds, photopolymerizable monomer having a specific molecular weight and isocyanate compound and capable of exhibiting adhesive force with improved initial adhesive force by applying to an adherend and irradiating with light.

CONSTITUTION: A composition containing (A) a compound having  $\geq 3,000$  number-average molecular weight and at least one photopolymerizable double bond in the molecule, e.g. polyester polyol having  $\geq 2$  hydroxyl groups in the molecule, etc., (B) a photopolymerizable monomer having 200W800 molecular weight, preferably (meth)acrylate having at least one photopolymerizable (meth) acryloyl group in the molecule and (C) an isocyanate compound, preferably tolylene diisocyanate, etc.

---

### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's

decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭63-46281

⑬ Int.Cl.

C 09 J 3/14  
3/16

識別記号

J D H  
J B G  
J F C

庁内整理番号

A-7102-4J  
B-7102-4J  
7102-4J

⑭ 公開 昭和63年(1988)2月27日

審査請求 未請求 発明の数 2 (全8頁)

⑮ 発明の名称 接着剤組成物

⑯ 特 願 昭62-86359

⑰ 出 願 昭62(1987)4月8日

優先権主張 ⑱ 昭61(1986)4月11日 ⑲ 日本(JP) ⑳ 特願 昭61-84547

㉑ 発 明 者 後 藤 鉄 香 兵庫県川西市大和四3丁目17番地の10  
 ㉒ 発 明 者 久 保 田 勉 大阪府三島郡島本町若山台1丁目6番9号  
 ㉓ 発 明 者 富 地 益 男 大阪府和泉市緑ヶ丘26番8号  
 ㉔ 発 明 者 小 谷 勲 一 大阪府吹田市津雲台5丁目18番 D75-102号  
 ㉕ 出 願 人 武田薬品工業株式会社 大阪府大阪市東区道修町2丁目27番地  
 ㉖ 代 理 人 弁理士 牧野 逸郎

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

接着剤組成物

## 2. 特許請求の範囲

(1) 数平均分子量が3000以上であつて、  
且つ、分子内に少なくとも一つの光重合性  
二重結合を有する化合物、

(2) 分子量が200~800である光重合性  
単量体、及び

(3) イソシアネート化合物  
を含有してなる接着剤組成物、

(4) 数平均分子量が5000以上である非光  
重合性の化合物、

(5) 分子量が200~800である光重合性  
単量体、及び

(6) イソシアネート化合物  
を含有してなる接着剤組成物、

## 3. 発明の詳細な説明

## 産業上の利用分野

本発明は、接着剤組成物に関し、詳しくは、被

着体に塗布した後、これに光照射することによつて、特に、初期接着力にすぐれる接着剤を形成する接着剤組成物に関する。

## 従来の技術

一般に、接着剤は、溶剤型、無溶剤型及び水性型に大別されるが、溶剤型接着剤は、接着に際して大量の溶剤を揮散させる必要があるために、安全性の面で問題があるうえに、環境汚染を引き起こすおそれもある。水性接着剤は、溶剤を用いないので、上記した問題は免れるが、大量の水を揮散させる必要があるため、熱費用的に好ましくないと共に、生産性に劣る問題がある。これらに対して、無溶剤型接着剤は、上記した問題がないために、近年、広い分野にて用いられるに至っている。しかし、例えば、二液型の無溶剤型接着剤は、混合後のポットライフが短く、作業性に難点があり、更に、初期接着力が十分でないため、接着体を貼り合わせた直後の接着力が非常に弱い。他方、無溶剤型であるホットメルト接着剤は、初期接着力もすぐれ、更に、安全衛生上の観点からも望ま

## 特開昭63-46281(2)

しい接着剤ではあるが、耐熱性のない被着体には通用できないこと、及び接着部分が耐熱性に劣るという本質的な欠点を有する。

従来の接着剤における上記した問題を解決するために、例えば、特開昭60-106716号公報に記載されているように、非光重合性成分とこの非光重合性成分の硬化剤と光重合性成分とを含有してなる無溶剤又は高固形分の二段反応型の接着剤が提案されている。かかる接着剤は、これを被着体に塗布した後、光照射することによつて、光重合性成分が重合して、すぐれた初期接着力を発現し、例えば、樹脂シートを厚きや割がれなしに被着体に貼り合わせることができ、しかも、この後の硬化剤による非光重合性成分の硬化によつて、樹脂シートと被着体との間に強い接着力を得ることができる。

しかし、用途によつては、尚、一層大きい初期接着力を有し、安全衛生上、取り扱いの容易な接着剤組成物が要望されている。

#### 発明が解決しようとする問題点

本発明者らは、上記した要望に応えるべく鋭意研究した結果、所定の数平均分子量を有する光重合性及び／又は非光重合性化合物、特定の分子量を有する光重合性単量体及びイソシアネート化合物を含有してなる接着剤組成物を被着体に塗布後、これに光照射するとき、貼り合わせ後に著しく大きい初期接着力を発現し、しかも、この後の化学硬化によつて強力な接着力を生じること、しかも安全衛生上、取り扱いの容易なことを見出して、本発明に至つたものである。従つて、本発明は、光照射によつて大きい初期接着力を有すると共に、その後の化学硬化によつて被着体を強力に接着し得る接着剤組成物を提供することを目的とする。

#### 問題点を解決するための手段

本発明による接着剤組成物は、

- (a) 数平均分子量が3000以上であつて、且つ、分子内に少なくとも一つの光重合性二重結合を有する化合物、
- (b) 分子量が200～300である光重合性単量体、及び

- (c) イソシアネート化合物
- を含有してなる。

更に、上記分子内に少なくとも一つの光重合性二重結合を有する化合物（以下、光重合性化合物という。）に代えて、数平均分子量5000以上である非光重合性の化合物を用いることによつても、本発明による接着剤組成物を得ることができる。

本発明において、光重合性化合物は、接着剤組成物に含まれる後述する光重合性単量体が光照射によつて重合体を形成するとき、この重合体と共同して、すぐれた初期接着力を発現し得るように、その数平均分子量が3000以上であることが必要である。

本発明においては、光重合性化合物は、この条件を満たす限りは、特に限定されるものではないが、特に好ましい具体例として、例えば、分子中に2以上の水酸基を有するポリエステルポリオール、ポリエーテルポリオール、ポリカプロラクトン、（メタ）アクリル酸誘導体の重合体、ポリエ

ステルウレタン、ポリエーテルウレタン等のポリオールの（メタ）アクリル酸エステルを挙げることができる。

例えば、ポリエステルポリオールとしては、（無水）マレイン酸、（無水）コハク酸、アジピン酸、フマル酸、（無水）フタル酸、テレフタル酸、イソフタル酸、（無水）メチルテトラヒドロフタル酸、（無水）テトラヒドロフタル酸、セバシン酸、ドデカン二酸、アゼライン酸、グルタル酸、（無水）トリメリット酸、（無水）ヘキサヒドロフタル酸、前記ダイマー酸等の多塩基酸と、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブチレングリコール、ヘキシレングリコール、デカンジオール、ネオペンチルグリコール等の脂肪族グリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール等の脂肪族ポリエーテルグリコール、グリセリン、トリメチロールプロパン、1,4-シクロヘキサジメタノール、ヒドロキシジバリン酸ネオペンチルグリコールエステル、1,4-シクロヘキサジジオール、水添ビスフェノール

## 特開昭63-46281(3)

A等の多価アルコールとの通常の方法を用いてエステル化して得られるポリエステルポリオール等を挙げる事ができる。

また、光重合性化合物として、上記以外にも、前述したポリオール、例えば、上述したポリエステルポリオールにジイソシアネートを介して、

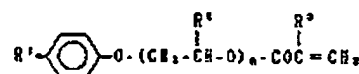
(メタ)アクリル酸エステルやヒドロキシアルキル(メタ)アクリレート等の(メタ)アクリル酸誘導体を付加させたものを挙げる事ができる。このような光重合性化合物は、分子鎖末端に(メタ)アクリロイル基又は水酸基と(メタ)アクリロイル基とを有する。このような光重合性化合物は、接着剤組成物において、通常、5～70重量%の範囲で配合される。

本発明においては、上記光重合性化合物に代えて、非光重合性化合物を用いることができる。この非光重合性化合物は、分子内に光重合性二重結合をもたない任意の化合物であつてよいが、前記光重合性化合物の場合と同様に、接着剤組成物に含まれる後述する光重合性単量体が光照射によつ

て重合体を形成するとき、この重合体と共同して、すぐれた初期接着力を発現し得るように、その数平均分子量は、5000以上であることが必要である。非光重合性化合物も、この条件を満たす限りは、特に制限されるものではなく、例えば、種々のビニル重合体、ポリエステル、ポリエーテル、ポリエステルウレタン、ポリエーテルウレタン、ポリカプロラクトン等を用いることができる。非光重合性化合物も、接着剤組成物において、通常、5～70重量%の範囲で配合される。

本発明においては、上記光重合性化合物と非光重合性化合物を併用することができ、この場合も、これらの化合物は合計量にて、接着剤組成物において通常は、5～70重量%の範囲で配合される。

次に、分子量が200～800の光重合性単量体は、分子内に1つの光重合性(メタ)アクリロイル基を有する(メタ)アクリレートが好ましく、具体例としては、例えば、一般式



(式中、R<sup>1</sup>は水素又はアルキル基、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>は水素又はメチル基、nは正整数を示す。但し、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>及びR<sup>3</sup>がすべて水素であるときには、nは2以上の整数である。)

で表わされるフェノール又はアルキルフェノールのアルキレンオキシド付加物の(メタ)アクリレート、ポリアルキレングリコールのモノ(メタ)アクリレート、ジシクロペンタニルオキシエチル(メタ)アクリレート、一般式



(式中、Rは水素又はメチル基、nは2以上の正整数を示す。)

で表わされるポリカプロラクトン(メタ)アクリレート、一般式



(式中、Rは水素又はメチル基、nは1以上の正整数を示す。)

で表わされるε-カプロラクトン変性した2-ヒ

ドロキシエチルメタクリレート、式



で表わされるアクリレートP550A(共栄社油脂工業製)、テトラヒドロフルフリルアルコール-カプロラクトン付加物の(メタ)アクリレート、例えば、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピルアクリレートのようなモノエポキシ化合物の(メタ)アクリル酸付加物等を挙げる事ができる。

これら光重合性単量体は、本発明による接着剤組成物において、5～90重量%の範囲で含有され、前記高分子量の光重合性又は非光重合性化合物との共存下においてのみ、すぐれた性能を示し、分子量200未満の低分子希釈剤を用いなくても、その塗布性を確保すると共に、接着剤組成物の光照射による重合によつて、前記光重合性化合物又は非光重合性化合物と共に初期接着力にすぐれた接着剤を形成する。単量体の分子量が200より

## 特開昭63-46281(4)

も小さいときは、希釈性はすぐれるが、毒性及び悪臭が強いために実用的でなく、他方、800よりも大きいときは、希釈剤としての効果が減る。特に好ましい分子量は220～500の範囲である。

次に、イソシアネート化合物としては、従来より知られている2官能性以上のポリイソシアネートを任意に用いることができる。好ましい具体例として例えば、トリレンジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネート（所謂クルードといわれるものでもよく、精製したものでもよい。）、3,3'-ジメチルジフェニルメタン-4,4'-ジイソシアネート、ナフチレン-1,5-ジイソシアネート、フェニレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、1,6-ヘキサメチレンジイソシアネート、1,4-テトラメチレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、水添されたトリレンジイソシアネート、水添されたジフェニルメタンジイソシアネート、水添されたキシリレンジイソシアネート等の芳香族、脂肪族、脂環族、芳香

脂肪族ジイソシアネートや、上記したこれらのジイソシアネートの2量体、3量体、ビウレット化合物や、更には例えばトリメチロールプロパンのような多価アルコールとの付加物、ポリエステルポリオールとの付加物等を挙げることができる。しかし、上記に限定されるものではなく、また、ポリイソシアネートの有するイソシアネート基の一部を水酸基とアクリロイル基を有する化合物、例えば、2-ヒドロキシアルキル（メタ）アクリレート等と反応させて得られる化合物も、イソシアネート化合物として用いることができる。

本発明による接着剤組成物において、イソシアネート化合物は、5～70重量%の範囲で含有される。

一般に、イソシアネート化合物は安定性がよくないため、本発明による接着剤組成物においては、必要に応じて二液型とし、使用時にイソシアネート化合物を他の成分と混合してもよい。

更に、本発明による接着剤組成物は、必要に応じて、分子内に1つ又は2つ以上の光重合性（メ

タ）アクリロイル基を有する種々のウレタン（メタ）アクリレート、エステル（メタ）アクリレート、エポキシ（メタ）アクリレート、多官能性（メタ）アクリレート等のような光重合性化合物を含有していてもよい。これら化合物は既に種々のものが知られており、例えば、前記特開昭60-168776号公報に具体例が多数記載されている。また、光重合性化合物として、N-ビニル-2-ピロリドン等を含有していてもよい。更に、これら以外にも、歯体公知光増感剤、光重合促進剤、充満剤、老化防止剤、安定剤、粘着付与樹脂、可塑剤、レベリング剤、ポリイソシアネートの架橋剤、有機溶剤等を含有していてもよい。

ポリイソシアネートの架橋剤としては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、テトラメチレングリコール、ネオペンチルグリコール、ブタンジオール、1,6-ヘキサジオール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレンエーテルグリコール、トリメチロールプロパン、グリセリン、ペンタエ

リスリトール、ヒマン油、ビスフェノールA-エチレンオキシド付加物、ビスフェノールA-プロピレンオキシド付加物のようなポリオールや、前記したポリエステルポリオールを挙げることができる。

また、これら以外にも、樹脂に水酸基又はアミノ基を有するアクリル重合体もイソシアネート化合物の硬化剤として用いることができる。かかるアクリル重合体としては、例えばN-メチロール（メタ）アクリルアミド、ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールモノ（メタ）アクリレート、アリルアルコール、ポリエチレングリコールのモノ（メタ）アクリル酸エステル、エチレングリコール又はポリエチレングリコールのモノビニルエーテル、プロピレングリコール又はポリプロピレングリコールのモノビニルエーテル、化学式



で表わされるダイセル化学工業製プラクセルF

## 特開昭63-46281(5)

A-1のような水酸基含有ビニル単量体、例えばアミノエチル(メタ)アクリレート、N-メチルアミノエチル(メタ)アクリレート、N-エチルアミノエチル(メタ)アクリレート、アリルアミン、ジアリルミン等の第1級乃至第2級アミノ基を含有するビニル単量体を自体公知のビニル重合法によつて重合させてなる重合体を挙げる事ができる。

更に、上記した水酸基含有ビニル単量体やアミノ基含有ビニル単量体と例えばメチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、n-ブチル(メタ)アクリレート、イソブチル(メタ)アクリレート、1-エチルプロピル(メタ)アクリレート、1-メチルペンチル(メタ)アクリレート、2-メチルペンチル(メタ)アクリレート、3-メチルペンチル(メタ)アクリレート、1-エチルブチル(メタ)アクリレート、2-エチルブチル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート、イソオクチル(メタ)アクリレート、3,5,5-トリメチルヘキシル(メ

タ)アクリレート、デシル(メタ)アクリレート、ドデシル(メタ)アクリレート、テトラヒドロフルフリル(メタ)アクリレート、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸、マレイン酸モノエステル、イタコン酸、グリンジル(メタ)アクリレート、グリンジルアリルエーテル、スチレン、酢酸ビニル、アクリロニトリル、メタクリロニトリル、ビニルエーテル等のビニル単量体とを自体公知のビニル重合法によつて重合させて得られる重合体も、イソシアネート化合物の硬化剤として用いることができる。

本発明による接着剤組成物は、光照射によつて速やかに重合する。ここにおいて、光とは、主として紫外線をいい、その波長範囲は約180~460nmである。かかる紫外線の発生源としては、例えば、低圧水銀灯、中圧水銀灯、高圧水銀灯、超高圧水銀灯、キセノン水銀灯、紫外線蛍光灯、炭素アーク灯等を挙げる事ができる。本発明においては、更に、α線、β線、γ線、X線、電子線等の放射線も用いることができる。

光として紫外線を用いるときは、接着剤組成物は、通常、光増感剤を含有する。好適に用い得る光増感剤としては、例えば、ベンゾイン、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル、ベンゾインオクチルエーテル等のベンゾイン化合物、ベンジル、ジアセチル、ジエトキシアセトフェノン、2-ヒドロキシ-2-メチルプロピオフェノン、4'-イソプロピル-2-ヒドロキシ-2-メチルプロピオフェノン、メチルアントラキノン、アセトフェノン、ベンゾフェノン、ベンゾイルギ酸メチル、ベンジルジメチルケタール、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2-メチル-1-(4-(メチルチオ)フェニル)-2-モルホリノ-アプロペン-1等のカルボニル化合物等を挙げる事ができる。

これら光増感剤の使用量は、光重合性化合物100重量部に対して、通常、約0.01~20重量部、好ましくは約0.1~10重量部程度である。

光として電子線やγ線のような電離性放射線を

用いる場合は、接着剤組成物は、増感剤を含有しなくとも、その照射によつて速やかに重合が進行するので、特に、増感剤を用いなくてもよい。

本発明による接着剤組成物の使用においては、任意の手段にて一方又は両方の被着体上に塗布し、光照射して、光重合性化合物及び光重合性単量体を重合させることによつて、被着体上に接着剤を形成させた後に被着体を相互に貼り合わせる。この貼り合わせは、室温にて、又は必要に応じて加熱下に行なう。被着体を加熱下に貼り合わせる場合は、被着体全体を加熱してもよいが、接着面のみを加熱してもよい。特に高い初期接着力を必要とするときは、光照射によつて形成された接着剤が高い軟化点を有するように、接着剤組成物における各成分を選択すると共に、上記したように加熱下に被着体を貼り合わせればよい。

## 発明の効果

本発明による接着剤組成物は、以上のように、所定の数平均分子量を有する光重合性化合物及び/又は非光重合性化合物を含有すると共に、所定

## 特開昭63-46281(6)

の低分子量光重合性単量体とイソシアネート化合物とを含有し、これへの光照射よつて被着体上で初期接着力にすぐれる接着剤を形成する。従つて、本発明の接着剤組成物によれば、光照射の後、直ちに被着体を厚みや割がれなしに貼り合わせることができるので、接着作業の生産性が著しく高められる。更に、その使用に際しては、有機溶剤の揮散が実質的にないか、又は少量であるので、安全衛生上も何ら問題がなく、しかも、不快なアクリル臭もない。

また、本発明による接着剤組成物は、貼り合わせ後、硬化反応が起こるため、ホットメルト接着剤のように、特に、接着後に加熱を必要としたときに剥離することはなく、耐熱性のすぐれた接着をすることができる。

更に、本発明の接着剤組成物は、光硬化可能な成分と化学硬化が可能な成分とを含有するので、後者の化学硬化によつて、前者の成分と後者の成分とが相互に侵入して網目構造を形成する結果、無圧締下においても、被着体間にすぐれた接着性

を得ることができる。

## 実施例

以下に実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれら実施例により何ら限定されるものではない。尚、以下において部を重量部を示す。

## 実施例 1

イソフタル酸 3.3 部、セバシン酸 4.2 部、ネオペンチルグリコール 3.7 部及びエチレングリコール 7.3 部を反応させてポリエステルポリオール(OH当量 1250)を得た。

このポリエステルポリオール 5.0 部、キシリレンジイソシアネート 3.7 部及びヒドロキシエチルアクリレート 1.1 部を酢酸エチル 1.3 部中で反応させて、光重合性化合物(数平均分子量約 5500)を得た。

次に、この光重合性化合物 1.5 部、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピルアクリレート 3.5 部、2-ヒドロキシ-2-メチルプロピオフェノン 2.5 部及びキシリレンジイソシアネート 3 モルとトリメチロールプロパン 1 モルとの付加物(炭

田高品工業製タケネート D-110N) 1.0 部を混合して接着剤組成物を得た。

この接着剤組成物をコロナ放電処理した厚さ 20  $\mu\text{m}$  の延伸ポリプロピレンフィルム上に 5  $\mu\text{m}$  厚さに塗布し、出力 80 W/cm の水銀ランプ 2 灯の下を 1.2 m/分の速度にて通過させ、紫外線を照射した後、印刷紙上に貼り合わせ、熱ロールにて圧着した。

この圧着の直後に上記フィルムを引き剥がしたところ、接着面では剥離が起こらず、印刷紙のインキ部において剥離した。

## 実施例 2

実施例 1 において得たポリエステルポリオール 1.5 部、 $\omega$ ,  $\omega'$ -ジイソシアネートメチルシクロヘキササン 3.8 部及びヒドロキシエチルアクリレート 1.1 部をフェニルジエチレングリコールアクリレート 3.4 部中で反応させて、光重合性化合物(数平均分子量約 8000)を得た。

次に、この光重合性化合物 9.5 部、フェニルジエチレングリコールアクリレート 5 部及びトリメ

チロールプロパン 1 モルとトリレンジイソシアネート 3 モルとの付加物をジフェニルメタンジイソシアネート(クルード)に等重量比にて溶解させてなる溶液 3.0 部及び 2-ヒドロキシ-2-メチルプロピオフェノン 3 部を混合して接着剤組成物を得た。

この接着剤組成物を厚さ 200  $\mu\text{m}$  の中硬質塩化ビニル樹脂シート上に 50  $\mu\text{m}$  厚さに塗布し、出力 80 W/cm の水銀ランプ 4 灯の下を 1.2 m/分の速度にて通過させ、紫外線を照射した後、50℃に加熱したパーティクル・ボード上に、温風で加熱しながら、塩化ビニル樹脂シートを貼り合わせ、更に 100℃の熱ロールでこれを圧着した。

冷却後、塩化ビニル樹脂シートをパーティクル・ボードから引き剥がしたところ、接着面では剥離が起こらず、パーティクル・ボードの表層部が破壊した。

## 実施例 3

実施例 1 において得た光重合性化合物 1.5 部と 2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピルアクリ



## 特開昭63-46281(7)

レート85部を混合した後、減圧下に80℃で酢酸エチルを留去した。冷却後、これに2-ヒドロキシ-2-メチルプロピオフェノン2.5部、ヘキサメチレンジイソシアネートの3量体（固形分100%）10部を加えて、接着剤組成物とした。

この接着剤組成物をコロナ放電処理した厚さ20μmの延伸ポリプロピレンフィルム上にグラビアリパスキスコーターにて連続的に20m/分の速度で45μm厚さに塗布し、引き続いて出力80W/cmの水銀ランプ2灯の下を通過させ、紫外線を照射した。この後、印刷紙上に貼り合わせて、温度65℃のニツプロールにて圧着したところ、光沢を有する美麗なプリント・ラミネートを得ることができた。

上記圧着直後にポリプロピレンフィルムを引き剥がしたところ、接着面では剥離が起こらず、印刷紙のインキ部で剥離した。

## 実施例4

実施例1において得たポリエステルポリオール2500部とジフェニルメタンジイソシアネート

200部とをノニルフェノキシエチルアクリレート1157部を溶剤として用いて反応させて、非光重合性化合物（数平均分子量約10000）を得た。

次に、この非光重合性化合物80部、ノニルフェノキシエチルアクリレート10部、 $\epsilon$ -カプロラクトン炭性した2-ヒドロキシ-2-メチルプロピオフェノン2.5部及びジフェニルメタンジイソシアネート（クルード）30部を混合して、接着剤組成物を得た。

この接着剤組成物をスレート板上に100g/m<sup>2</sup>の割合で塗布し、出力80W/cmの水銀ランプにて紫外線を2秒間照射した後、その上にタイルを圧着した。一昼夜放置した後、タイルを剥離したところ、接着面では剥離が起こらず、スレート又はタイルが破壊した。

## 実施例5

イソフタル酸331部、セバシン酸402部、ネオペンチルグリコール376部及びエチレングリコール73部を反応させて、ポリエステルポリ

オール（OH当量1250）を得た。次に、このポリエステルポリオール100部とジフェニルメタンジイソシアネート（クルード）500部とを反応させて、イソシアネート化合物（アミン当量170、25℃における粘度3000cps）を得、これを主剤とした。

別に、上記主剤の調製において用いたポリエステルポリオール270部、1,4-シクロヘキサジメタノール15.6部、ヒドロキシエチルアクリレート9.35部、及び光重合性単量体としての別記アクリレートP-550A（共栄社油脂工業製）110部を四つ口フラスコに仕込み、70℃に昇温して、均一に溶解させた後、これに2,4-トリレンジイソシアネート37.6部を加え、80℃で3時間反応させ、アミン当量を150000以上とし、これを溶液Aとした。

上記の反応においては、ポリオール成分としてのポリエステルポリオールと1,4-シクロヘキサジメタノールが2,4-トリレンジイソシアネートと反応してなるポリウレタン構造の末端がヒド

ロキシエチルアクリレートとウレタン結合を形成している末端アクリロイル基の光重合性ポリウレタンアクリレートが形成されている。その数平均分子量は、約4600である。

次に、この溶液Aの100部にN-ビニル-2-ピロリドン10部、2,2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン5部及びジクロロメタン20部を混合して、硬化剤とした。

次いで、前記主剤40部と上記硬化剤100部とを混合して、接着剤組成物を調製した。

この接着剤組成物を厚さ200μmの中硬質塩化ビニル樹脂シート上に50μm厚さに塗布し、出力80W/cmの水銀ランプ2灯の下を15m/分の速度にて通過させ、紫外線を照射した後、パーティクル・ボードを50℃に加温しながら、これに貼り合わせた。

この接着剤組成物を25℃の温度にて4日間放置した後、湿度23%、湿度50%の雰囲気下において、引張速度200mm/分にて180°剝離接着力を測定したところ、2.5kg/25mmであつて、接着